Docket No.: A1585.0001

(PATENT)

#### IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

In re Patent Application of:

Akio Ogawa, et al.

Application No.: Not Yet Assigned

Group Art Unit: N/A

Filed: Concurrently Herewith

Examiner: Not Yet Assigned

For: ORGANIC EL DISPLAY ELEMENT

## **CLAIM FOR PRIORITY AND SUBMISSION OF DOCUMENTS**

MS Patent Application Commissioner for Patents P.O. Box 1450 Alexandria, VA 22313-1450

Dear Sir:

Applicant hereby claims priority under 35 U.S.C. 119 based on the following prior foreign application filed in the following foreign country on the date indicated:

CountryApplication No.DateJapan2002-282912September 27, 2002

Application No.: Not Yet Assigned

In support of this claim, a certified copy of the said original foreign application is filed herewith.

Dated: July 14, 2003

Respectfully submitted,

Mark J. Thronson

Registration No.: 33,082

DICKSTEIN SHAPIRO MORIN &

Docket No.: A1585.0001

OSHINSKY LLP

1177 Avenue of the Americas

41st Floor

New York, New York 10036-2714

(212) 835-1400

Attorney for Applicant

# 日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2002年 9月27日

出 願 番 号

Application Number:

特願2002-282912

[ST.10/C]:

[JP2002-282912]

出 願 人 Applicant(s):

スタンレー電気株式会社

2003年 5月27日

特 許 庁 長 官 Commissioner, Japan Patent Office



#### 特2002-282912

【書類名】 特許願

【整理番号】 STA02-0026

【提出日】 平成14年 9月27日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H05B 33/00

【発明者】

【住所又は居所】 東京都目黒区中目黒2丁目9番13号 スタンレー電気

株式会社内

【氏名】 小川 昭雄

【発明者】

【住所又は居所】 東京都目黒区中目黒2丁目9番13号 スタンレー電気

株式会社内

【氏名】 高山 浩一

【発明者】

【住所又は居所】 東京都目黒区中目黒2丁目9番13号 スタンレー電気

株式会社内

【氏名】 長崎 篤史

【発明者】

【住所又は居所】 東京都目黒区中目黒2丁目9番13号 スタンレー電気

株式会社内

【氏名】 近郷 泰郎

【特許出願人】

【識別番号】 000002303

【氏名又は名称】 スタンレー電気株式会社

【代理人】

【識別番号】 100062225

【弁理士】

【氏名又は名称】 秋元 輝雄

【電話番号】 03-3475-1501

## 【手数料の表示】

【予納台帳番号】 001580

【納付金額】

21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】

明細書 1

【物件名】

図面 1

【物件名】

要約書 1

【包括委任状番号】

9705782

【プルーフの要否】

要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 有機EL表示素子

【特許請求の範囲】

【請求項1】 基体上に陽極、複数の材料及び層から成る有機層、電子注入層、陰極を順次に積層して成る有機EL表示素子であり、前記陰極の形成後には更に加えてこの陰極上に応力緩和層を設け、前記陰極の膜応力が圧縮応力のとき応力緩和層は引っ張り応力を示す膜、又は、前記陰極の膜応力が引っ張り応力のとき応力緩和層は圧縮応力を示す膜であることを特徴とする有機EL表示素子。

【請求項2】 前記陰極と前記応力緩和層との膜応力の和が、絶対値で10(N/m)以下であることを特徴とする請求項1記載の有機EL表示素子。

【請求項3】 前記陰極の材料がAlであるとき、前記応力緩和層が、Cu,In,Mg,Mn,Ni,Mo,Ti,MgF,MgO,SiO,GeO $_2$ ,ZnO,Si $_3$ N $_4$ ,Mn $_2$ O $_3$ のうちの少なくとも1種類から成る応力緩和層であることを特徴とする請求項1又は請求項2記載の有機EL表示素子。

【請求項4】 前記陰極上に前記応力緩和層以外の層が成膜される場合、陰極と応力緩和層とその他の層の膜応力の和が、絶対値で10(N/m)以下であることを特徴とする請求項1~請求項3何れかに記載の有機EL表示素子。

#### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】

本発明は、発光層に電流を注入することにより電気エネルギーを光エネルギーに変換し自発光にて表示するEL表示素子に関するものであり、詳細には前記発光層に8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体など有機発光層が採用された有機EL表示素子に係るものである。

[0002]

【従来の技術】

従来の有機EL表示素子90をドットマトリクス表示を行うときの構成の例で 示すものが図2及び図3であり、透明基板91上にITO膜などによる透明電極9 2をストライブ状に設け、その上に正孔輸送層93、有機発光層94、そして、 前記透明電極92と略直交するストライブ状に陰極95を真空蒸着法などにより 順次成膜し発光部96(図3参照)としている。

[0003]

尚、図示は省略するが、前記ITO透明電極92と正孔輸送層93との間に正 孔注入層を設ける構成としたもの、有機発光層94と陰極95との間に電子輸送 層を設ける構成としたもの、あるいは、正孔注入層と電子輸送層との双方を設け る構成とした発光部96も提案されている。

[0004]

ここで、前記発光部96は大気中では湿気などによる劣化の進行が著しく短寿命であるので、図2に示すように、前記陰極95の背面側に封止基板97を設置し、前記発光部96の周囲をシール剤98で封止し、更に乾燥剤99を封止空間内に設置することで延命化を可能としている。

[0005]

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記した従来の構成の有機EL表示素子90において、例えば 夏期の炎天下に駐車する乗用車の室内など周囲温度が高温となる条件下で放置さ れると比較的に短時間で発光部表面に斑状の輝度ムラが発生し、表示品質が著し く低下するものとなる問題点を生じていた。

[0006]

【課題を解決するための手段】

本発明は、上記した従来の課題を解決するための具体的手段として、基体上に 陽極、複数の材料及び層から成る有機層、電子注入層、陰極を順次に積層して成 る有機EL表示素子であり、前記陰極の形成後には更に加えてこの陰極上に応力 緩和層を設け、前記陰極の膜応力が圧縮応力のとき応力緩和層は引っ張り応力を 示す膜、又は、前記陰極の膜応力が引っ張り応力のとき応力緩和層は圧縮応力を 示す膜であることを特徴とする有機EL表示素子を提供することで課題を解決す るものである。

[0007]

【発明の実施の形態】

つぎに、本発明を図に示す実施形態に基づいて詳細に説明する。図1に示すものは本発明に係る有機EL表示素子1の断面図であり、本発明においても有機EL表示素子1が、透明基板2、透明電極3、正孔輸送層4、有機発光層5、陰極6、封止基板7、シール剤8、及び、乾燥剤9とから構成されている例で説明する。

## [0008]

ここで、本発明では前記陰極6の背面に応力緩和層10を設けるものであり、 この応力緩和層10は、前記陰極6が引っ張り応力を示す膜の場合は圧縮応力を 示す膜が選択され、前記陰極6が圧縮応力を示す膜である場合は引っ張り応力を 示す膜が選択されて形成される。

## [0009]

圧縮応力を示す素材としては、 $SiO_2$ , $CeO_2$ , $Y_2O_3$ などがあげられ、引っ張り応力を示す素材としては、Cu,In,Mg,Mn,Ni,Mo,Ti, $MgF_2$ ,MgO,SiO, $GeO_2$ ,ZnO, $SiO_3$ , $Mn_2$ , $Mn_2$ , $Mn_2$ , $Mn_3$ ,

## [0010]

前記応力緩和層10の膜厚は、前記陰極6の膜応力と、この応力緩和層10の 膜応力との和が絶対値で10(N/m)以下、好ましくは5(N/m)となるように調整を 行うものであるため、前記陰極6の示す膜応力と、この応力緩和層10として選 択された素材の示す膜応力とにより様々な値をとり得る。

## [0011]

例えば、前記陰極 6 の示す膜応力が圧縮応力で、-10(N/m)である場合、応力緩和層 10 は引っ張り応力で 10(N/m) 程度であることが好ましく、よって、内部応力が引っ張り応力で  $10\times10^8(N/m^2)$  程度を示すMnであれば膜厚 10 nm程度が好ましく、内部応力が引っ張り応力で  $0.5\times10^8(N/m^2)$  程度を示す Tiであれば膜厚 200 nm程度が好ましいものとなる。

#### [0012]

尚、有機EL表示素子1の構成によっては、前記陰極6上に保護膜(図示せず)などが付加されている場合もある。このように陰極6上に複数の層が設けられ

ている場合、それら複数の層の膜応力の和を陰極6側における膜応力と考え、その膜応力に対応する応力緩和層10を形成すれば良いものとなる。また、この場合、陰極6上における保護膜と応力緩和層10との設けられる順序は自由である

## [0013]

ついで、有機EL表示素子1の各部の構成につき説明する。まず透明基板2としては、ガラス、PET樹脂、ポリカーボネート樹脂、非晶質ポリオレフィン樹脂などが採用される。また、前記透明電極3としては仕事関数の大きな導電材料、例えばITO,SnO2,ZnOなどの透明導電膜を採用するのが好ましいが、Auなどの半透明膜であっても良い。

## [0014]

陰極6としては、Al,In,Mg,Tiなどの金属や、Mg-Ag合金、Mg-In合金などのMg 系合金や、Al-Li合金、Al-Sr合金などのAl系合金が採用される。また、Li,Ca,Sr ,Csなどの仕事関数の低い金属、あるいは、LiF,CaF,LiOなど仕事関数の低い金属 のフッ化物、酸化物を電子注入層6 a として薄く成膜し、その上に金属を陰極6 として形成しても良い。

## [0015]

正孔輸送層4としては、正孔移動度が高く、透明で成膜性の良いものが好ましくTPD(Triphenyldiamine)などトリフェニルアミン誘導体のほかに、フタロシアニン、銅フタロシアニンなどのポリオレフィン系化合物、ヒドラゾン誘導体、アリールアミン誘導体などが採用される。

#### [0016]

尚、従来例でも説明したように正孔輸送層4は正孔注入機能を有する層と、正 孔輸送機能を有する層とを個別に設けても良く、この場合の正孔注入機能を有す る層は透明電極3からの正孔の注入を効率化し、正孔輸送機能を有する層は正孔 の輸送を効率よく行うと共に電子を妨げる機能を有する。そして、これらの膜厚 は10~200mmが好ましい。

#### [0017]

有機発光層5としては、発光効率が高いこと、薄膜性の良いこと、そして、お

互いが接する層との界面で強い相互作用を生じないことが好ましく、アルミキレート錯体(Alq3)、ジスチリルビフェニル誘導体(DPVBi)などのジスチリルアリーレン(DSA)系の誘導体、キナクリドン誘導体、ルブレン、クマリン、ペリレン系の材料が用いられ、これらの材料を単層、複層、あるいは混合した層として10~200mの膜厚として成膜する。

## [0018]

封止基板7としては透湿性の低い部材が好ましく、金属、ガラスなどが選択される。また、透明基板2と封止基板7とを外周で接着するシール剤8も透湿性の低いものであることが好ましく、熱硬化性樹脂、光硬化性樹脂など適宜なものが採用される。

#### [0019]

乾燥剤9は水分を物理的、科学的に吸収する素材であれば良く、例えば活性炭のように多孔質であり物理的に水分を吸着する材料、BaOなどのように化学反応により水分を吸着する材料、あるいは、双方の性質を有する材料であり、上記以外にも、水酸化アルミニウム、酸化カルシウム、五酸化二リン、硫酸カルシウム、硫酸マグネシウム、ゼオライトなどがあげられる。

#### [0020]

つぎに、本発明を成すための発明者による試作、検討の結果を記載する。尚、 この試作、検討に当たっては、陰極6と応力緩和層10とに生じる応力差を基準 として試料A~試料Kを製作し、所定温度(85℃)で、所定時間(250hr) 放置することで判定を行っている。よって、陰極6と応力緩和層10とを除く部 分は全て同一条件で形成されている。

## [0021]

## 【表1】

試料	陰 極	応力緩和層	膜応力	総合膜応力	試験結果
Α	A1=200nm	Ti=200nm	11(N/m)	4(N/m)	0
В	A1= 40nm	Ti=200nm	11(N/m)	9(N/m)	Δ
С	A1=200nm	Si0=200nm	7(N/m)	O(N/m)	0
D	A1=200nm	Si02=200nm	-200(N/m)	207(N/m)	××
E	A1=200nm	Mn203=200nm	54(N/m)	47(N/m)	××
F	A1=200nm	Zn0=200nm	34(N/m)	27(N/m)	××
G	A1=200nm	Y2O3=100nm	-27(N/m)	34(N/m)	××
Н	A1=200nm	CeO <sub>2</sub> =100nm	-4(N/m)	11(N/m)	×
I	A1=200ก๓	Cu=100nm	13(N/m)	6(N/m)	0
J	A1=200nm	In=100nm	9(N/m)	2(N/m)	0
K	A1=200nm	MgF2=400nm	45(N/m)	38(N/m)	××

[0022]

表1は上記試料A~試料Kを本発明の要旨の部分で抜粋して表示したものであり、試料Aはアルミニウム(A1)で200nm膜厚とし膜応力が-7(N/m)である陰極6に対し、チタニウム(Ti)で200nm膜厚とし膜応力が11(N/m)である応力緩和層10を設けたものであり、このときの陰極6と応力緩和層10との総合の膜応力の絶対値は4(N/m)である。そしてこの試料Aを85℃の雰囲気中に250時間放置したときの試験結果では、顕著な輝度ムラの発生は検出されず、実用性において充分なる耐久性を有すると判定できるものであった。

#### [0023]

続いて、試料Bとしてアルミニウム(A1)で40nm膜厚とし膜応力が-2(N/m)である陰極6を形成し、この陰極6に対してチタニウム(Ti)で200nm膜厚とし膜応力が11(N/m)である応力緩和層10を設けたときのものであり、このときの陰極6と応力緩和層10との総合の膜応力の絶対値は9(N/m)である。そして同じ熱耐久試験を行った結果では、軽度の輝度ムラの発生が検出され、実用性においてやや劣ると判定された。

#### [0024]

以上の試験結果から応力緩和層10の有効性が確認されたので、以下に、応力

緩和層10を形成する材料を換えて更なる試験を行った。試料CはSiOで200nm膜厚とし膜応力が7(N/m)である応力緩和層10を設けたときのものであり、このときの総合の膜応力の絶対値は0(N/m)である。そして、熱耐久試験の結果は当然に優良であった。

[0025]

以下、 $SiO_2$ (試料 D)、 $Mn_2O_3$ (試料 E)、ZnO(試料 F)、 $Y_2O_3$ (試料 G)、 $CeO_2$ (試料 H)、Cu(試料 I)、In(試料 J)、 $MgF_2$ (試料 K)の各材料で総合の膜応力の絶対値が、207、47、27、34、11、6、2、38 (N/m)となる応力緩和層 10 を形成し、同様な熱耐久試験を行ったが、その結果では応力緩和層 10 が形成された素材には関係なく、総合の膜応力の絶対値が 5 (N/m)以下であれば良好な結果が得られることが確認された。

[0026]

#### 【発明の効果】

以上に説明したように本発明により、基体上に陽極、複数の材料及び層から成る有機層、電子注入層、陰極を順次に積層して成る有機EL表示素子であり、前記陰極の形成後には更に加えてこの陰極上に応力緩和層を設け、前記陰極の膜応力が圧縮応力のとき応力緩和層は引っ張り応力を示す膜、又は、前記陰極の膜応力が引っ張り応力のとき応力緩和層は圧縮応力を示す膜である有機EL表示素子としたことで、車両に搭載する、映像音響機器の表示部など、従来は高温により輝度ムラの発生が懸念されるような使用条件下でも問題を生じることなく使用可能として、この種の有機EL表示素子の汎用性の向上に極めて優れた効果を奏するものである。

## 【図面の簡単な説明】

- 【図1】 本発明に係る有機EL表示素子の実施形態を示す断面図である。
- 【図2】 従来例の要部を示す説明図である
- 【図3】 従来例を示す断面図である。

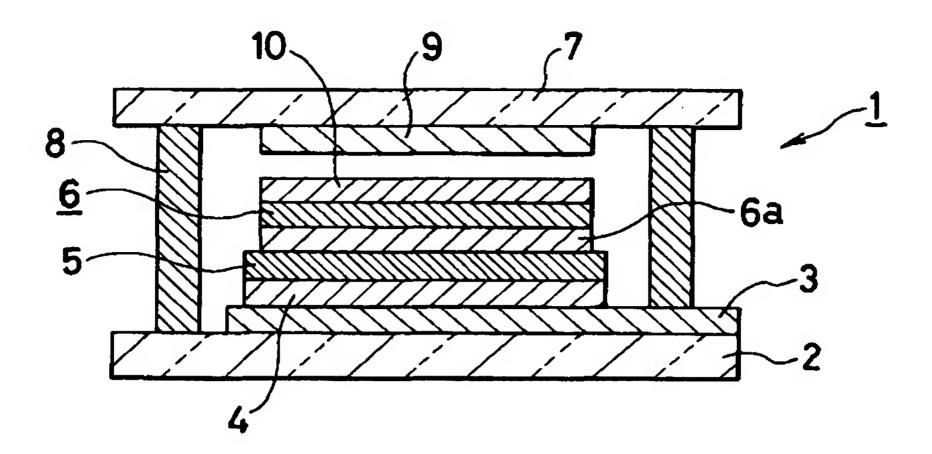
#### 【符号の説明】

- 1 ……有機 E L 表示素子
- 2 ……透明基板

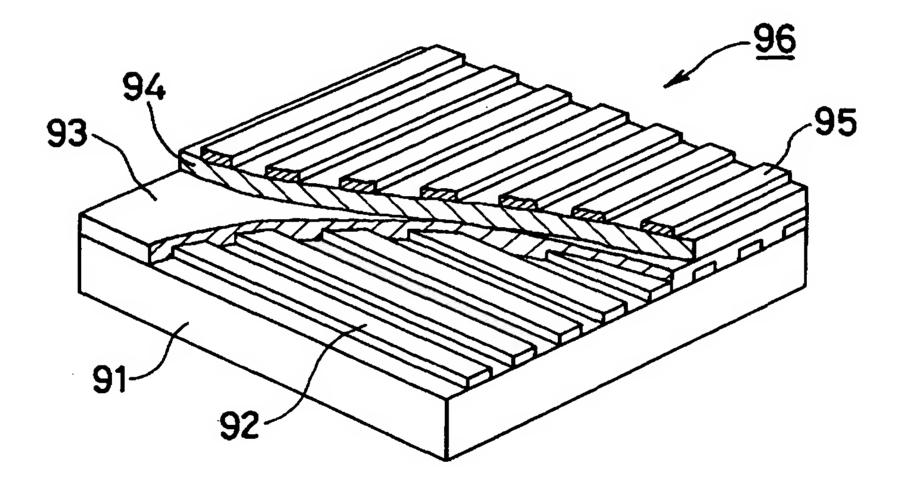
- 3 ……透明電極
- 4 ……正孔輸送層
- 5 ……有機発光層
- 6 ……陰極
  - 6 a ……電子注入層
- 7……封止基板
- 8 ……シール剤
- 9 ……乾燥剤
- 10……応力緩和層

## 【書類名】 図面

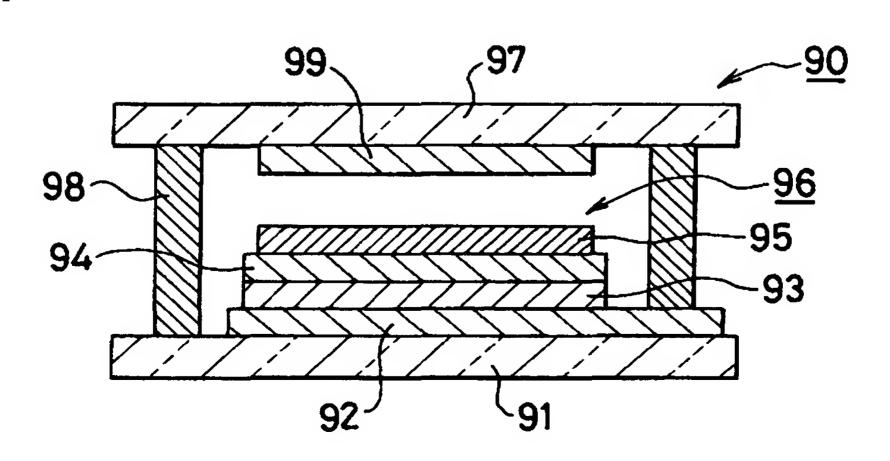
# [図1]



【図2】



【図3】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 従来のこの種の有機EL表示素子においては、高温により輝度ムラを発生するものであり、例えば車載用の表示装置などには使用できず、汎用性に劣る問題点を生じていた。

【解決手段】 本発明により陰極6の形成後には更に加えてこの陰極6上に応力緩和層10を設け、陰極6の膜応力が圧縮応力のとき応力緩和層10は引っ張り応力を示す膜、又は、陰極6の膜応力が引っ張り応力のとき応力緩和層10は圧縮応力を示す膜である有機EL表示素子1としたことで、陰極6の膜応力に起因する輝度ムラの発生を防止して課題を解決し、この種の有機EL表示素子に汎用性を与えることを可能とする。

【選択図】 図1

## 出願人履歴情報

識別番号

[000002303]

1. 変更年月日 1990年 8月 8日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都目黒区中目黒2丁目9番13号

氏 名 スタンレー電気株式会社